

**BIODEGRADABLE FIBER REINFORCED MOLDING AND ITS PRODUCTION****Publication number:** JP9169897**Publication date:** 1997-06-30**Inventor:** MUKAI KATSUYUKI; YAMADA YOSHIHISA; SAWARA TETSUYA**Applicant:** UNITIKA LTD**Classification:****- international:** C08G63/16; C08L67/04; C08G63/00; C08L67/00;  
(IPC1-7): C08L67/04; C08G63/16**- european:****Application number:** JP19950348248 19951219**Priority number(s):** JP19950348248 19951219**Report a data error here****Abstract of JP9169897**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain a biodegradable fiber reinforced molding that has sufficient strength during a period within which an object is to be realized, is decomposed in the natural environment after achieving the object and is excellent in heat resistance by using biodegradable reinforcing fibers. **SOLUTION:** This biodegradable fiber reinforced molding in which 5-500 pts.wt. highly heat-resistant biodegradable reinforcing fibers having a mean length of 1-50mm are bonded in a dispersed state to 100 pts.wt. aliphatic polyester resin. It is obtained by dispersing 100 pts.wt. aliphatic polyester powder and/or fibers and 5-500 pts.wt. highly heat-resistant biodegradable reinforcing fibers having a mean length of 1-50mm, preferably together with a binder, in a liquid medium, removing the liquid medium to form a sheet, drying the sheet, heating it at a temperature above the melting point of the polyester and compressing it. Examples of highly heat-resistant biodegradable reinforcing fibers used include natural fibers, regenerated fibers and polyvinyl alcohol fibers.

---

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-169897

(43)公開日 平成9年(1997)6月30日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 08 L 67/04	LPD	C 08 L 67/04	LPD	
C 08 G 63/16	NLP	C 08 G 63/16	NLP	

審査請求 未請求 請求項の数2 FD (全4頁)

(21)出願番号 特願平7-348248  
(22)出願日 平成7年(1995)12月19日

(71)出願人 000004503  
ユニチカ株式会社  
兵庫県尼崎市東本町1丁目50番地  
(72)発明者 向井 克之  
京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株  
式会社中央研究所内  
(72)発明者 山田 良尚  
京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株  
式会社中央研究所内  
(72)発明者 佐原 哲也  
京都府宇治市宇治小桜23番地 ユニチカ株  
式会社中央研究所内  
(74)代理人 弁理士 大島 道男

(54)【発明の名称】 生分解性繊維強化成形体およびその製造方法

(57)【要約】

【課題】 自然環境中で使用された場合に、使用目的が  
果たされるべき期間内は十分な強度を有し、使用目的が  
果たされた後は自然環境中の微生物によって分解され  
て、消滅することのできる耐熱性に優れた生分解性繊維  
強化成形体を提供する。

【解決手段】 平均繊維長1～50mmの強化用生分解  
性繊維5～500重量部が脂肪族ポリエステル樹脂10  
0重量部に分散状態で結合している。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 平均繊維長1～50mmの耐熱性の高い強化用生分解性繊維5～500重量部が脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に分散状態で結合していることを特徴とする生分解性繊維強化成形体。

【請求項2】 脂肪族ポリエステル粉末および/または繊維100重量部と平均繊維長1～50mmの耐熱性の高い強化用生分解性繊維5～500重量部とを液状媒体中に分散させ、次いで該液状媒体を除去してシートを形成し、乾燥させた後、脂肪族ポリエステルの融点以上の温度で加熱圧縮成形することを特徴とする生分解性繊維強化成形体の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、生分解性を有するマトリックス樹脂と生分解性を有する強化繊維とからなる、生分解性繊維強化成形体およびその製造方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 近年、地球的規模での環境問題に対して、自然環境中で分解される素材が要望されているが、綿、麻などに代表される天然繊維は土中などに埋設されると、使用する繊維により異なるが、早いもので約2週間で分解が始まり、強度が低下し、半年も経つと、ほとんどが消滅してしまう欠点があった。

【0003】 そのため、天然繊維は土中や水中などの環境下で使用された場合には、その使用目的を果たさないうちに強度低下が起こるので、そのような条件下での使用は制限を受け、特に長期間にわたる安定性を必要とされる分野には、使用されていない。そのような分野には、芳香族ポリエステル、ナイロンなどの合成繊維が使用されているが、これらの合成繊維は土中や水中などで使用された場合、長期間後においても土中や水中に形状が保持された状態で残り、分解されないため、大きな環境問題を引き起こす可能性がある。

【0004】 一方、脂肪族ポリエステルはポリエチレンテレフタレートなどの芳香族ポリエステルと比較すると、融点や機械的物性が低いことから、これまで注目されることは少なかった。しかしながら、近年、地球的規模での環境問題に対して、自然環境中で分解される高分子素材の開発が要望されるようになり、その中でも安価で、かつ大量に供給することのできる脂肪族ポリエステルは、汎用プラスチックに代替可能な生分解性素材として大きな期待が寄せられている。

【0005】  $\alpha$ ,  $\omega$ -脂肪族ジオールと $\alpha$ ,  $\omega$ -脂肪族ジカルボン酸との溶融重縮合によって製造される脂肪族ポリエステルとして、ポリエチレンサクシネート、ポリブチレンサクシネートやポリブチレンアジペートなどは古くから知られたポリマーで、土壌中に埋設すると、微生物により生分解されることが確認されている。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、これらの脂肪族ポリエステルは、前述のように融点が低いが、そのなかでも比較的高い融点をもつものとして、ポリブチレンサクシネートやポリエチレンサクシネートが挙げられるが、それでも融点はポリブチレンサクシネートにおいては、118℃前後、ポリエチレンサクシネートは104℃前後である。また、他の脂肪族ポリエステルにおいても、一般的に融点が低いため、現在使用されている汎用樹脂などに比べて、耐熱性などの点で劣っている。さらに、引張強さや破断伸びなどの機械的物性が低いので、その用途が制約される欠点があった。

【0007】 本発明は、前述のような問題点を解消し、使用目的が果たされるべき期間内においては、十分な強度を有し、使用目的を果たした後においては自然環境中で二酸化炭素と水にまで分解され、自然環境に対し負荷を与えることがなく、また脂肪族ポリエステル単体の場合よりも、耐熱性に優れた生分解性繊維強化成形体を提供することを目的とするものである。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】 本発明は、前記目的を達成するもので、平均繊維長1～50mmの強化用生分解性繊維5～500重量部が脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に分散状態で結合していることを特徴とする生分解性繊維強化成形体、および脂肪族ポリエステル粉末および/または繊維100重量部と平均繊維長1～50mmの強化用生分解性繊維5～500重量部とを液状媒体中に分散させ、次いで該液状媒体を除去してシートを形成し、乾燥させた後、脂肪族ポリエステルの融点以上の温度で加熱圧縮成形することを特徴とする生分解性繊維強化成形体の製造方法を要旨とするものである。

## 【0009】

【発明の実施の形態】 以下、本発明について詳細に説明する。本発明の生分解性繊維強化成形体は、熱可塑性の脂肪族ポリエステル樹脂と、耐熱性の高い強化用生分解性繊維とからなるものである。

【0010】 本発明に使用する脂肪族ポリエステルとしては、具体例として、以下のものが挙げられる。ポリグリコール酸やポリ乳酸などのポリ( $\alpha$ -ヒドロキシ酸)またはこれらの共重合体、ポリ( $\epsilon$ -カブロラクトン)やポリ( $\beta$ -プロピオラクトン)などのポリ( $\omega$ -ヒドロキシアルカノエート)、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)、ポリ(3-ヒドロキシバリレート)、ポリ(3-ヒドロキシカブロレート)、ポリ(3-ヒドロキシヘプタノエート)、ポリ(3-ヒドロキシオクタノエート)などのポリ( $\beta$ -ヒドロキシアルカノエート)とポリ(4-ヒドロキシブチレート)などの微生物産生ポリエステルなどが挙げられる。

【0011】 また、グリコールと脂肪族ジカルボン酸との重縮合により得られるものとして、ポリエチレンサク

シネット、ポリブチレンサクシネット、ポリヘキサメチレンサクシネット、ポリエチレンアジペート、ポリブチレンアジペート、ポリヘキサメチレンアジペート、ポリエチレンオキザレート、ポリブチレンオキザレート、ポリネオベンチルオキザレート、ポリエチレンセバケート、ポリブチレンセバケート、ポリヘキサメチレンセバケートなどが挙げられる。これらは2種あるいはそれ以上の共重合体であってもよく、また、これらを主成分とするものであれば、他成分、例えば芳香族ジカルボン酸や多官能性の水酸基およびカルボン酸などを含んでもよい。さらに、前記脂肪族ポリエステルとナイロンに代表される脂肪族ポリアミドとの共重合体である脂肪族ポリエステルアミドも挙げられる。

【0012】本発明に使用する耐熱性の高い強化用生分解性繊維としては、木綿、亜麻、ラミー、ちょ麻、大麻、マニラ麻、カポック、パルプ、羊毛、絹などの天然繊維、またはビスコースレーヨン、ベンベルグレーヨン、ポリノジックレーヨン、溶剤紡糸レーヨンなどの再生繊維、ポリビニルアルコール繊維、またはこれらの混用品などが挙げられる。

【0013】本発明における脂肪族ポリエステルと強化用生分解性繊維との混合比は、脂肪族ポリエステル100重量部に対して強化用生分解性繊維5～500重量部であることが必要であり、好ましくは10～300重量部、特に好ましくは20～200重量部である。生分解性繊維の混合比が、脂肪族ポリエステル100重量部に対して5重量部未満の場合は、充分な強度を与えることが難しく、また、500重量部を超える場合には加工性が悪くなり、使用に耐える成形体を得ることが難しくなる。

【0014】本発明の生分解性繊維強化成形体は、例えば次のような方法で製造することができる。まず、脂肪族ポリエステル100重量部と、強化用生分解性繊維5～500重量部とを水中に分散させる。これにより、脂肪族ポリエステル中に強化用生分解性繊維が均一に分散した複合化の状態となる。

【0015】ここで使用する脂肪族ポリエステル粉末の粒径は、1mm以下であることが望ましく、特にこの範囲で樹脂の均一分散が可能であり、均一な成形体が得られる。また、脂肪族ポリエステル繊維の平均繊維長は50mm以下であることが望ましく、特にこの範囲で液状媒体中に分散し易く、均一な成形体が得られる。

【0016】また、前記の強化用生分解性繊維の平均繊維長としては、1～50mmのものが用いられ、特に3～25mmが好ましい。平均繊維長が1mmより短い場合には、強度が低下する傾向にあり、50mmを超える場合は、繊維とマトリックス樹脂の均一性が得られにくい傾向にある。強化用繊維の平均繊維径は2～100μmのものが用いられ、特に5～50μmが好ましい。2μm以下の場合には、本発明の製造方法における液状媒

体の効率的な除去、乾燥が難しくなる傾向にあり、100μm以上の場合には、均一な分散状態が得られにくい傾向にある。

【0017】水中に脂肪族ポリエステルと強化用生分解性繊維を分散させて複合化する際には、例えば、結合剤を用いることが好ましく、得られるシートに対して結合剤を固体分で0.1～10重量%添加させることが好ましく、特に0.2～5重量%添加させることが好ましい。そのような結合剤としては、例えば、結合したスルホニウム塩、イソチオウロニウム基、ビリジニウム基、第四アンモニウム基、サルフェート基、スルホネット基またはカルボキシレート基を含有するアクリルポリマーまたはスチレン/ブタジエンポリマーのような結合した陰イオンもしくは陽イオン電荷を有する実質的に水に不溶な有機ポリマーからなるポリマーラテックスが挙げられる。この他、澱粉、特に天然澱粉またはコーンスタークのような線状澱粉並びに、陽イオン澱粉を含む酵素的もしくは化学的に変性した澱粉を含めた澱粉なども結合剤として適している。

【0018】さらに、脂肪族ポリエステルと強化用生分解性繊維を分散させて複合化する際には、有機凝集剤を用いることが好ましく、そのような有機凝集剤としては、アルミニウム・ポリクロリド（アルミニウム・ヒドロオキシクロリド）、一部加水分解したポリアクリラミド、変性陽イオンポリアクリラミド、ジアリルジエチルアンモニウムクロリドなどの種々の有機凝集剤が挙げられる。この凝集剤の添加量は生分解性繊維強化成形体の3重量%以下が好ましく、1重量%以下が好適である。

【0019】この他、水中で脂肪族ポリエステルと強化用繊維を分散させたスラリーの粘度を調整する目的で、キサンタンゴムなどの粘度調整剤を使用することもできる。

【0020】このようにして、水中で脂肪族ポリエステルと強化用生分解性繊維とを分散、複合化した後、シートを形成する。シートの成形には、望ましくは抄紙機などを用いて抄紙の要領で水中の固形物をシート状となすように固液分離することが望ましい。得られた湿ったシートを乾燥した後、1枚のシート状態もしくは2枚以上の積層体の状態で加熱プレスする。このとき、加熱プレスする際の温度としては、マトリックス樹脂としての脂肪族ポリエステルの融点より10～50°C高いことが好ましく、圧力としては、5～100kg/cm<sup>2</sup>であることが好ましい。さらに、加熱プレス後は、各種の手段で冷却するが、加熱プレスと同圧力で、温度10～50°Cで冷却プレスを行うことが望ましい。

【0021】このようにして、本発明の生分解性繊維強化成形体が得られるが、シート状以外の形状の成形体を得る場合には、前記加熱プレスを施さないシートを予め予熱した後、金型を用いてコールドプレスする方法、ま

たは金型を用いてホットメルトプレスする方法などを用いることができる。この際の予熱温度またはホットメルトプレスの温度は脂肪族ポリエステルの融点以上、250°C以下であることが好ましい。

【0022】本発明の生分解性繊維強化成形体は、平均繊維長1～50mmの耐熱性の高い強化用生分解性繊維が脂肪族ポリエステル樹脂中に分散状態で結合しているので、脂肪族ポリエステル樹脂の欠点であった強度、耐熱性が著しく向上するとともに、耐熱性の高い強化用生分解性繊維の一般的欠点である分解の容易さを抑制し、使用にさいして水中や土中に埋設されても使用目的が果たされるべき期間内においては、十分な強度を示すこととなった。さらに、脂肪族ポリエステル樹脂と強化用生分解性繊維は、とともに生分解性なので、使用目的を果たした後においては自然環境中で二酸化炭素と水にまで分解され、自然環境に対し負荷を与えることがない。

【0023】

【実施例】以下、本発明を実施例によって具体的に説明する。

#### 実施例1

水17.5リットル中に攪拌しながら、キサンタンガム0.25gを加えた後、強化用繊維として麻繊維（中国製、5mm）87.5gをこの水に加え、5分間攪拌してよく分散させた。

【0024】次いで、この分散物に、マトリックス樹脂としてポリエチレンサクシネット樹脂粉末（平均粒子径32μm）87.5gと、固体アクリルポリマーラテックス6gを加えた後、0.5重量%の陽イオン凝集剤（Betz Laboratories社製、商品名：Betz 1260）63gを徐々に加えることによって凝集させてスラリーを得た。

【0025】このスラリーを水17.5リットルを含有するシートマシン〔熊谷理機工業（株）製〕に加え、0.18mmのスクリーン上で脱水して湿ったシートを得、次いで得られたシートを軽く圧縮し、60°Cで乾燥させて水を除去することにより麻繊維強化脂肪族ポリエステル樹脂複合シートを得た。このとき、脂肪族ポリエステル樹脂100重量部に対し、麻繊維は100重量部

であった。

【0026】このシートを2枚積層し、20kg/cm<sup>2</sup>の圧力下で、140°Cで加圧加熱後、同圧力下で40°Cで冷却することにより、基底重量580g/m<sup>2</sup>の圧縮シートを得た。

【0027】得られたシートをJIS K7127に準じた引張り試験を行ったところ、4.4kg/mm<sup>2</sup>の引張り強度を示した。また、得られたシートの耐熱性をJIS K7207に準じて熱変形温度を測定したところ、101.3°Cという優れた結果が得られた。

【0028】実施例2

麻繊維の代わりにレーヨン繊維（大和紡社製 7d×3mm）87.5g、ポリエチレンサクシネット樹脂粉末の代わりにポリブチレンサクシネット繊維（85d×3mm）87.5gを用いることを除いては実施例1と全く同様にして、基底重量580g/m<sup>2</sup>の圧縮シートが得られた。このシートの引張り試験を行ったところ、4.1kg/mm<sup>2</sup>の引張り強度を示した。また、得られたシートの耐熱性を実施例1と同様の条件下で行ったところ、熱変形温度が116.8°Cという優れた結果が得られた。

【0029】比較例1

実施例1で用いたポリエチレンサクシネット樹脂粉末をヒートプレスによりフィルムとし、実施例1と同じ引張り試験を行ったところ2.5kg/mm<sup>2</sup>の強度であった。また、得られたシートの耐熱性を実施例1と同様の条件下で行ったところ、熱変形温度が69.7°Cという結果が得られた。

【0030】

【発明の効果】本発明によれば、生分解性をもつ脂肪族ポリエステルと天然繊維に代表される耐熱性の高い強化用生分解性繊維を複合化することによって、脂肪族ポリエステルの強度、耐熱性を飛躍的に上昇させることができ、また、自然環境中で使用された場合に、使用目的が果たされるべき期間内は十分な強度を有し、使用目的が果たされた後は自然環境中の微生物によって分解されて、消滅することのできる生分解性繊維強化成形体を提供することが可能となる。